

# Europäisches Patentamt European Patent Office Office européen des brevets

(I) Veröffentlichungsnummer:

0 307 818

**(2)** 

# EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(1) Anmeldenummer: 88114759.9

(a) Int. Cl.4: C08L 53/02 , C08L 25/14

2 Anmeldetag: 09.09.88

Priorität: 15.09.87 DE 3730886

Veröffentlichungstag der Anmeldung:
 22.03.89 Patentblatt 89/12

Benannte Vertragsstaaten: BE DE FR GB NL  Anmelder: BASF Aktiengesellschaft Carl-Bosch-Strasse 38
 D-6700 Ludwigshafen(DE)

@ Erfinder: Waiter, Hans-Michael, Dr. Im Haagweg 6 D-6701 Ruppertsberg(DE) Erfinder: Schwaben, Hans-Dieter, Dr. Lindenstrasse 6a D-6721 Freisbach(DE)

Erfinder: Bueschi, Rainer, Dr. Hollandstrasse 14 D-6701 Roedersheim-Gronau(DE) Erfinder: Bronstert, Klaus, Dr.

Gartenstrasse 26 D-6718 Carlsberg(DE) Erfinder: Echta, Adolf, Dr. Lauschnerstrasse 42 D-6700 Ludwigshafen(DE)

Transparente, schlagfeste thermoplastische Formmasse, Vertahren zur Herstellung derseiben und Ihre Verwendung.

Die Erfindung betrifft eine transparente, schlagfeste, thermoplastische Formmasse, enthaltend, bezoben auf A+B,

№ 5 bis 95 Gew.% eines durch anionische Polymerisation hergesteilten Blockcopolymerisates, aus 40 bis 95 Gew.% Styrol und

60 bis 5 Gew.% Butadien

— und wobel das Blockcopolymerisat ausgewählt ist aus der Gruppe der linearen Blockcopolymerisate, der Overzweigten Blockcopolymerisate oder deren Mischungen,

Qund

A

Xerox Copy Centre

PAGE 3/13 \* RCVD AT 7/20/2005 3:15:17 PM [Eastern Daylight Time] \* SVR:USPTO-EFXRF-6/28 \* DNIS:2738300 \* CSID:215 419 7075 \* DURATION (mm-ss):03-04

Е

95 bis 5 Gew.% mindestens eines weiteren, Styrol enthaltenden Copolymerisats. Charakteristisch ist, daß ein Copolymerisat B verwendet wird, das 97 bis 55 Gew.% Styrol und 3 bis 45 Gew.% Methylmethacrylat in statistischer Verteilung einpolymerisiert enthält.
Die Fommasse wird zur Herstellung von Formtellen verwendet.

## Transparente, schlagfeste thermoplastische Formmasse, Verfahren zur Herstellung derselben und ihre Verwendung

Die Erfindung betrifft eine transparente schlagfeste, thermoplastische Fommasse, enthaltend, bezogen auf A+B.

5 bis 95 Gew.% eines durch anionische Polymerisation hergestellten Blockcopolymerisates, das außgebaut ist, bezogen auf A, aus

40 bis 95 Gew.% Styrol und

60 bis 5 Gew.% Butadien

und wobei das Blockcopolymerisat ausgewählt ist aus der Gruppe der linearen Blockcopolymerisate. der verzweigten Blockcopolymerisate und deren Mischungen,

und

В

95 bis 5 Gew.% mindestens eines welteren, Styrol enthaltenden Copolymerisats.

Zum Stand der Technik werden genannt

- (1) DE-O\$ 19 59 922
- (2) DE-O\$ 25 50 227 und
- (3) DE-PS 26 10 068.

25

(1) und (2) beschreiben transparente, sternförmig verzweigte Styrol-Dien-Block-Copolymenistie und deren Herstellung. In (3) werden Mischungen aus den in (1) und (2) beanspruchten Blockcopolymerisaten und Polystyrol beschrieben.

Die aus (3) bekannten Mischungen besitzen den Nachteil, daß der Mischungsbereich und der Dien-Gehalt der Block-Copolymerisate und damit die Kontrolle der mechanischen Eigenschaften durch die gleichzeitigen Anforderungen an die Transparenz stark eingeschränkt werden. Die Komponenten dieser Mischungen sind nur begrenzt verträglich und deshalb je nach Zusammensetzung mehr oder weniger zweiphasig und damit trübe.

Es ist ferner bekannt, daß Trübungen in unverträglichen Stoffgemischen durch die Angleichung der

Brechungsindices von Komponenten einer Mischung vermieden werden können.

Als das bekannteste System hierfür gilt PVO, das mit den üblichen Schlagzähmodifieren auf Besis von ABS trübe, nicht transparente Mischungen ergibt. Wählt man jedoch MBS oder AMBS als Pfropfmischpolymerisat, so können transparente Abmischungen mit PVC erzielt werden.

Es bestand die Aufgabe, die Nachteile der aus (3) bekannten Mischung zu beheben, d.h. insbegondere die mechanischen Eigenschaften bei guter Transparenz zu verbessern. Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß in den bekannten Mischungen aus Blockcopolymerisat und Polystyrol anstelle von Polystyrol ein Copolymerisat verwendet wird, das

97 bis 55 Gew.% Styrol und

3 bis 45 Gew.% Methylmethacrylat

in statistischer Verteilung einpolymerisiert enthält.

Die Erfindung betrifft eine transparente, schlegfeste, thermoplastische Formmasse, enthaltend, tipzogen auf A+B.

Α

5 bis 95 Gew.% mindestens eines durch anionische Polymerisation hergestellten Blockcopolymerisates, das aufgebaut ist, bezogen auf A, aus

40 bis 95 Gew.% Styrol und

60 bis 5 Gew.% Butaclen

und wobel das Blockcopolymerisat ausgewählt ist aus der Gruppe der linearen Blockcopolymerisate, der verzweigten Blockcopolymerisate oder deren Mischungen,

В

95 bis 5 Gew.% mindestens eines weiteren, Styrol enthaltenden Copolymerisats,

dadurch gekennzeichnet, daß als weiteres, Styrol enthaltendes Copolymerisat ein solches verwendet wird.

97 bis 55 Gew.% Styrol und

3 bis 45 Gew.% Methylmethacrylat

in statistischer Verteilung einpolymerisiert enthält.

Die Vorteile der erfindungsgemäßen Formmasse bestehen darin, daß man über den Methylmethacrykat-Gehalt den Brechungsindex der Copolymerisate wakt dem des Styrol-Butadien-Copolymerisates anpasjen kann.

Dadurch besitzen die erfindungsgemäßen Formmassen über einen wesentlich größeren Mischungsbereich ausgezeichnete Transparenz und zwar sowohl in bezug auf den Gehalt an Butadien im Styrol-Butadien-Blockcopolymerisat als auch in bezug auf dessen Gehalt in der Mischung. Man kann dadurch mischen MMA haltige Styrolpolymerisate mit 5 bis Gew.% Styrol-Butadien- Blockcopolymerisaten bei Butadiengehalten im Bereich von 5 bie 60 Gew.% und erhält in diesem breiten Bereich transparente Mischungen.

Zusätzlich zu diesen Vorteilen der besseren Transparenz und größeren Zusammensetzungsbreite jer Mischungen weisen die erfindungsgemäßen Formmassen ferner überraschend bessere mechanische Eigenschaften auf als vergleichbare auf Basis von Polystyrol. Insbesondere liegen die Zähigkeitswerte bei vergleichbaren oder besseren Stelfigkeiten höher.

Nachstehend werden der Aufbau der Formmasse aus den Komponenten, die Komponenten und deren Herstellung, sowie die Herstellung der Formmasse beschrieben.

Die Formmasse enthält, jeweils bezogen auf die Summe aus A+B.

A: 95 bis 5 Gew.%, vorzugsweise 20 bis 80 Gew.%

B: 5 bis 95 Gew.%, vorzugsweise 80 bis 20 Gew.%.

Vorzugsweise besteht die Formmasse aus den Komponenten A+B. Zusätzlich kann die Formmasse, insbesondere für bestimmte Anwendungen, bezogen auf 100 Gewichtsteile A+B, je 0,01 bis 50 Gewichtstelle, vorzugsweise 0,1 bis 30 Gewichtstelle üblicher Zusatzstoffe (Komponente C) enthalten.

# Komponente A

Als Komponente A kommen ganz allgemein an sich bekannte, durch antonische Polymerisation imit lithiumorganischen Verbindungen in organischen Lösungsmitteln hergestellte Blockcopolymerisate in Betracht, die aus Styrol und Butadien aufgebaut sind. Ein (Teil)Ersatz von Butadien durch Isopren ist möglich. Die Blockcopolymerisate weisen in der Regel Styrolgehalte von 40 bis 95 Gew.%, vorzugsweise von 50 bis 80 Gew.% und insbesondere von 60 bis 80 Gew.% auf (Rest Butadien und/oder Isopren) bei Viskositätszighlen. VZ. von 50 bis 130 [ml/g], vorzugsweise von 65 bis 96 [ml/g] und insbesondere von 70 bis 90 [ml/g] (gemessen 0.5 %ig in Toluol bei 23 C).

Als Blockcopolymerisate kommen solche aus der Gruppe der linearen Blockcopolymerisate mit schlarfen oder verschmierten Übergängen zwischen den Blöcken in Betracht, die gegebenenfalls auch uißter Verwendung von üblichen bifunktionellen Kopplungsmitteln hergestellt sein können. Diese können 2 bis 10 Blöcke aufweisen, Die Herstellung derartiger Blockcopolymerisate ist an sich bekannt und z.B. in der US PS 3 149 182, der EP-PS 00 58 952 und EP-PS 0 153 727 beschrieben.

Als weltere Gruppe von Blockcopolymerisaten kommen die verzweigten Blockcopolymerisate in 3e-

tracht, die in an sich bekannter Welse aus den linearen Blockcopolymerisaten, insbesondere den "living anion" durch Kopplung mit multifunktionellen Kopplungsmitteln erzeugt werden, wobei je nach der Funktionalität des Kopplungsmittels 3 bis 12 Stemäste entstehen. Art und Umfang der Kopplung können mittels GPC-Analyse (Molgewichtsbestimmung), gegebenenfalls unter Abbau, ermittelt werden.

Verzweigte Sternblockcopolymerisate und deren Herstellung sind z.B. in der US-PS 3 281 383 tzw. der GB-PS 985 614 beschrieben. Polymodal aufgebaute verzweigte Blockcopolymerisate sind aus der DE-OS 19 59 922 bekannt. Schilleßlich eind andersartige verzweigte Blockcopolymerisate in der DE-OS 25 50 227 beschrieben. Die Kopplungsreaktion zur Herstellung verzweigter Blockcopolymerisate verläuft nicht quantitativ, so daß die verzweigten Blockcopolymerisate aus komplaxen Mischungen linearer und verzweigter Blockcopolymerisate bestehen können. Im Sinne der vorliegenden Erfindung sollen jedoch die Umsetzungsprodukte der Kopplung inklusive der ungskoppeiten Anteile als verzweigte Blockcopolymerisate verstanden werden. Bevorzugt werden verzweigte Blockcopolymerisate angewendet, die nach der Lehre der DE-OS 19 59 922 und insbesondere nach der Lehre der DE-OS 25 50 227 (mit verschmierten Übergängen zwischen den Blöcken) hergestellt worden sind.

Schließlich können auch Mischungen von Blockcopolymerisaten aus der zunächst beschriebenes ersten Gruppe der Ilnearen und der zweiten Gruppe der verzweigten Blockcopolymerisate in Betracht kommen. Besonders bevorzugt werden die sternförmigen verzweigten polymodal aufgebauten Blockcopolymerisate.

### zo Komponente B

Die Komponente B ist ein an sich bekanntes etatistisch aufgebautes Styrol-Methylmethacrylatcopolymeriset, das 87 bis 55 Gew.% Styrol und 3 bis 45 Gew.% MMA einpolymerisiert enthält. Um den Vicat-Wert derartiger Copolymerisate und auch den der Mischungen aus A + B zu erhöhen, kann das Styrol ganz oder teilweise durch a-Methylstyrol oder p-Methylstyrol oder MSA ersetzt werden. Die VZ derartiger Copolymerisate (Inklusive der Terpolymerisate) liegt im Bereich von 60 bis 120 [ml/g], insbesondere im Bereich von 70 bis 110 [ml/g]. Die bevorzugt angewendeten statistischen Styrol-Methylmethacrylat-Copolymeren werden radikalisch, kontinuierlich (vgl. DE-PS 10 91 329) oder diskontinuierlich z.B. durch ein Masse-Suspensions-Verfahren, hergestellt (vgl. Beispiele).

# Komponente C

30

Die erfindungsgemäßen Formmassen können als weitere Komponente C Zusatzstoffe enthalten, wie sie für derertige Polymerisate üblich sind. Als solche seien beispielsweise genannt: Füllstoffe, weitere verträgliche Kunststoffe, Antistatika, Farbstoffe, Antioxidantien, Flammschutzmittel und Schmiermittel. Die Zusatzstoffe werden in üblichen Mengen eingesetzt.

#### Herstellung der Formmasse

Die Formmasse wird erhalten, vorzugsweise durch Abmischen von A mit B und gegebenenfall mit C, in einem Arbeitsgang.

Das Abmischen der Komponenten A, B und gegebenenfalls C kann nach allen bekannten Methoden erfolgen. Es ist z.B. möglich, die Polymer-Lösungen miteinander zu vermischen, darauf die Polymerisate gemeinsam auszufällen und das Polymerisat-Gemisch aufzuarbeiten. Vorzugsweise geschieht jedech das Abmischen der Komponente A+B und gegebenenfalls C durch gemeinsames Extrudieren, Knetyn oder Verwalzen der Komponenten in der Schmelze.

Die erlindungsgemäße Formmasse wird nach den üblichen, für die Verarbeitung von Thermoplasten bekannten Verfahren z.B. Spritzguß oder Tiefzlehen zu Fertigteilen verarbeitet. Sie finden insbesondere Verwendung für Gehäuse von Elektrogeräten, Haushaltsgeräten, Telefonen, für Platten, Rohre. Folien. Kinderspielzeug.

Die in der vorliegenden Anmeldung beschriebenen Parameter wurden wie folgt bestimmt:

- 1. Die Kerbschlagzähigkeit, au in [kJ/m²] der an Proben der Produkte wurde nach DIN 53 453 an bei 230°C gespritzten Normkleinstäben bei 23°C gemessen.
- 2. Die Viskositätszahl der Komponenten A+B wurde analog DIN 53 726 in einer Lösung, die 0,5 g Polymerisal in 100 cm³ Toluci enthielt bei 23° C bestimmt.
  - 3. Der E-Modul wird nach DIN 53 457 bestimmt.

- 4. Vicat-Erweichungstemperatur [ ° C] gemäß DIN 53 480, Methode B.
- 5. Rel&festigkeit, RF, in [N/mm²] und Rel&dehnung, RD, in [%] nach DIN 53 455.
- Brechungsindex, no, nach DIN 53 491, gemessen bei 20°C.

Für die Herstellung erfindungsgemäßer Formmassen und von Formmassen für Vergleichsversuche wurden die nachfolgend beschriebenen Produkte verwendet.

Komponente A

ıΩ

Es wurde ein stemförmiges, polymodal aufgebautes Styrol-Butadien-Blockcopolymerisat verwendet (Handelsprodukt der BASF; Styrolux® 684 D, mit ca. 22 Gew.% Butadien und einem Brechungsindex no von 1,57 bei 20°C, bei einer VZ von 82 mi/g).

20

Die Herstellung eines weiteren unsymmetrischen, stamförmig verzweigten Styrol-Butadien-Blockcopolymerisats mit 20 Gew.% Butadien ist nachfolgend beschrieben: Die Polymerisation wurde unter Inertgabatmosphäre in einem Rührkessel mit Cyclohexan als Lösungsmittel durchgeführt. Zunächst wurden 48,3 Gew.% der gesamten Styrolmenge (8,5 l) mlt 16 Gew.% der gesamten Butyllithiummenge (0,044 l 1,45 N) in 30 min bei 65°C auspolymerisiert. Nach Zugabe der restlichen Butyllithiummenge (0,232 1 1,45 N) wurden 39,8 Gew.% der gesamten Styrolmenge (7,0 l) In 25 min bei 60°C und anschließend eine Mischlang aus 6.2 I Butadien und dem restlichen Styrol (2,1 I) unter Erhöhung der Temperatur auf 78°C auspolymertsiert. Die Kopplung zum sternförmigen Blockcopplymer wurde mit 59,1 g eines epoxidierten Leinsamer ols (Edenoi® B 316 Fa. Henkel) bei 78°C in 20 mln durchgeführt. Der Feststoffgehalt tag am Ende der Polymerisation bei ca. 25 Gew.%. Das Produkt wurde durch Zusatz von 0,3 Gew.% eines sterisch gehinderten Phenois als Antioxidans (Irganox® 1078 Fa. Ciba-Geigy) stabilisiert und durch Verdampfen les Lösungsmittels aufgearbeltet. Die Viskositätszahl lag bei 82,1 ml/g, der Brechungsindex, np, bei 1,576.

A<sub>3</sub> 35

> Es wurde nach dem unter A2 beschriebenen Verfahren ein Blockcopolymerisat mit 40 Gew.% Butac]en hergestellt. VZ = 80 (m/g),  $n_p = 1,562$ .

Komponenta B

8,

Es wurde ein Styrol-Methylmethacrylat-Copolymeres mit 15.6 Gew.% Methylmethacrylat hergestellt. Die Copolymerisation wurde in einem kontinuierlich durchflossenen Rührkessel bei einer Innentemperatur fon 124 °C, einem Feststoffgehalt von 48 Gew.% und einer mittleren Verweitzeit von 5.2 Stunden durchgeführt. Der Zulauf enthielt 83,1 Gew;% Styrol, 11,9 Gew.% Methylmathacrylat, 5,0 Gew.% Ethylbenzol und Cj01 Gew.% tert.-Butylperbenzoat. Das Copolymerisat wies eine Viskositätszahl von 75 mi/g und einen & rechungsindex  $n_0 = 1.575$  auf.

B<sub>2</sub> + B<sub>3</sub>

55

Es wurden 2 Styrol-Methylmethacrylat-Copolymere nach einem Masse-Suspensions-Verfahren hergestellt. Styrol (St) und Methylmethacrylat (MMA) wurden dazu unter Zusatz von tert.-Dodecylmercardan (TDM) als Molekulargewichtsregler vorgelegt und unter Rühren bei T = 123°C bis zu Umsätzen von 40 bis

50 % in Masse polymeristert. Anschließend wurden 0,1 Teile Dicumylperoxid, Wasser und Luviskole K 80, Handelsprodukt der BASF Aktiengesellschaft, einem Suspendierhilfsmittel auf Basie von Polyethylenoxid zugegeben und in wäßriger Suspenston 6 Stunden bei T = 130°C und 6 Stunden bei T = 140°C auspolymerisiert. Die in Perlenform erhaltenen Produkte wurden gewaschen, getrocknet und anschließend bei T = 250°C konfektioniert. Im einzelnen wurden folgende Produkte hergestellt:

	B <sub>2</sub>	Ba		
Sty (Gew.%)	85,6	71,2		
MMA (Gew.%)	14,4	28,7		
TDM (Gew.%)	0,025	0,025		
Λα	1,578	1,564		
VZ (ml/g)	88	84		

84

10

15

Für Vergleichszwecke wurde ein Standardpolystyrol der VZ 74 ml/g (Handelsprodukt PSKR 2608 der BASF Aktiengesellschaft) verwendet.

В5

50

55

Ebernfalls zum Vergleich diente ein Standardpolystyrol der VZ 96 (Handelsprodukt PS 158 K der BASF Aktlengesellschaft).

# Komponente C

Durch die Komponenten A<sub>1</sub> bis A<sub>3</sub> wurde jewells das Anticoddans, ein stenisch gehindertes Phenoleingebracht.

Die nachfolgenden Beispiele und Vergleichsversuche sollen die Erfindung näher erläutern. Die angegebenen Teile und Prozente beziehen sich auf das Gewicht.

# Beispiele 1 bis 5 und Vergleichsversuche I bis V

In allen Beispielen und Vergleichsversuchen wurden die Komponenten A. (mit C) mit B. auf einem ZSK 30-Extruder der FA. Werner und Pfielderer bei 220°C angemischt.

# Beispiel 1 und Vergleichsversuch I

Es wurden je 50 Gewichtsteile A<sub>1</sub> mit B<sub>1</sub> (Beispiel 1) und je 50 Gewichtsteile A<sub>1</sub> mit B<sub>4</sub> - (Vergleichsversuch I) gemischt.

Die Ergebnisse der mechanischen Prüfung eind in der folgenden Taballa 1 zusammengefaßt:

Aussehen	Beispiel 1 transperent	Vergleichsversuch in the trub		
E-Modul (N/mm²)	2477	2363		
Streckspannung (Wmm²)	45,3	42,0		
Reißdehnung (%)	18,3	10,5		
Vicat B (°C)	78,3	81,7		
Kerbschlagzähigkeit (kJ/m²)	6,5	5,6		

**7** .

Beispiele 2 bis 5 und Vergleichsversuche II bis V:

Die in der Tabelle 2 genannten Teile an A<sub>a</sub> und B<sub>a</sub> wurden, wie vorstehend beschrieben, gemische in die Tabelle sind auch die Ergebnisse der mechanischen Prüfung mit aufgenommen.

Tabelle 2

Beispiel		2		3		4	İ	5
Vergleichsversuch .	•	Ц	•	EI	•	ľV	·	V
Komponente A: Art	Aa	Az	Aa	A <sub>2</sub>	Aa	A	As	A <sub>3</sub>
Menge (%)	25	25	75	75	25	25	50	50
Komponente B: Art	82	Bs	B <sub>2</sub>	Bs	Ba	B <sub>6</sub>	Ba	B₅
Menge (%)	75	75	25	25	75	75	50	50
E-Modul	2777	2775	1840	1687	2403	2385		•
Vicat B	90.0	93,8	68,5	84,7	79,4	85,2	48,8	63.0
Reißfestigkeit	42.8	40,2	22.7	20,8	32,1	29,1	20.4	18.4
Reißdehnung	5	2	16	8	38	30	71	71
Kerbschlagzähigzähigkeit	4,8	3,5	5,2	4,8	6,8	4,0	60,0	28.8

Alle erfindungsgemäßen Formmassen weisen bei erwartungsgemäß hohen Transparenzen bessere mechanische Eigenschaften als die Proben der Vergleichsversuche auf.

#### ansprüche 🐾

1. Transparente, schlagfeste, thermoplastische Formmasse, enthaltend, bezogen auf A+B,

· /

5 bis 95 Gew.% mindastens eines durch anknische Polymerisation hergestellten Blockcopolymerisates. das aufgebaut ist, bezogen auf A, aus

40 bis 95 Gew.% Styrol und

60 bis 5 Gew.% Butadien

und wobei das Blockcopolymerisate ausgewählt ist aus der Gruppe der linearen Blockcopolymerisate. Der verzweigten Blockcopolymerisate oder deren Mischungen.

0 6

95 bis 5 Gew.% mindestens eines weiteren, Styrol enthaltenden Copolymerisats,

dadurch gekennzeichnet, daß als weiteres, Styrol enthaltendes Copolymerisat ein solches verwendet wird.

das

97 bis 55 Gew.% Styrol und

3 bis 45 Gew.% Methylmethacrylat

in statistischer Verteilung einpolymerisiert enthält.

- Formmasse nach Anspruch 1. dadurch gekennzeichnet, daß diese übliche Zusatzstoffe (Komponente C) enthält.
- 3. Formmasse nach Ansprüchen 1 oder 2. dadurch gekennzeichnet, daß das Blockcopolymerisat A aus 50 bis 80 Gew.% Styrol und

50 bis 20 Gew.% Butadien

aufgebaut ist.

4. Formmasse nach Ansprüchen 1 oder 2. dadurch gekennzeichnet, daß das Blockcopolymerisat A verzweigt und polymodal aufgebaut ist aus

60 bis 80 Gew.% Styrol und

40 bis 20 Gew.% Butadien.

- 5. Fornmasse nach Ansprüchen 1, 2, 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Blockcopolymerisat A aus der Gruppe der verzweigten Blockcopolymerisate mit 3 bis 12 Stemästen ausgewählt wird, wobei die einzelnen Stemäste Segmente mit scharfen und/oder segenannten verschmierten Übergängen zwischen den Styrol- und Butadienblöcken aufweisen.
- 6. Verfahren zur Herstellung der Formmassen gemäß Ansprüchen 1 bis 5 durch übliches Mischen der Komponenten A mit B und gegebenenfalls C.
  - 7. Verwendung von Formmassen gemäß Ansprüchen 1 ble 5 zur Herstellung von Formteilen.
  - 8. Formteile aus Formmassen gemäß Ansprüchen 1 bis 5.

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

# **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.